



日 本 国 特 許 庁  
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日                      2 0 0 2 年 1 0 月 1 6 日  
Date of Application:

出 願 番 号                      特 願 2 0 0 2 - 3 0 1 9 2 0  
Application Number:

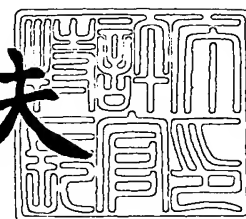
[ST. 10/C] :                      [ J P 2 0 0 2 - 3 0 1 9 2 0 ]

出      願      人                      松 下 電 器 産 業 株 式 有 限 公 司  
Applicant(s):

2 0 0 3 年    7 月 2 5 日

特 許 庁 長 官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

今 井 康 夫



【書類名】 特許願

【整理番号】 2033740214

【あて先】 特許庁長官殿

【国際特許分類】 H01M 8/00

【発明者】

    【住所又は居所】 大阪府門真市大字門真 1 0 0 6 番地 松下電器産業株式会社内

    【氏名】 羽藤 一仁

【発明者】

    【住所又は居所】 大阪府門真市大字門真 1 0 0 6 番地 松下電器産業株式会社内

    【氏名】 日下部 弘樹

【発明者】

    【住所又は居所】 大阪府門真市大字門真 1 0 0 6 番地 松下電器産業株式会社内

    【氏名】 小原 英夫

【特許出願人】

    【識別番号】 000005821

    【氏名又は名称】 松下電器産業株式会社

【代理人】

    【識別番号】 100072431

    【弁理士】

    【氏名又は名称】 石井 和郎

【選任した代理人】

    【識別番号】 100117972

    【弁理士】

    【氏名又は名称】 河崎 眞一

## 【手数料の表示】

【予納台帳番号】 066936

【納付金額】 21,000円

## 【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 0114078

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 燃料電池

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 イオン伝導性電解質、前記イオン伝導性電解質を挟持するアノードとカソード、前記アノードに接するアノード側導電性セパレータ、および前記カソードに接するカソード側導電性セパレータからなる単セルを積層してなる燃料電池において、

前記アノード側導電性セパレータは、前記アノードと対面する部位に、前記アノードに燃料ガスを供給するための燃料ガス流通溝を有し、

前記カソード側導電性セパレータは、前記カソードと対面する部位に、前記カソードに酸化剤ガスを供給するための酸化剤ガス流通溝を有し、

前記燃料ガス流通溝および前記酸化剤ガス流通溝の少なくとも一方は、上流から下流に向かって蛇行しながら伸びるサーペントイン状であって、互いに平行で実質的に同じ長さ  $a$  を有する複数の水平部を有し、

前記複数の水平部のうち、最上流側の水平部と最下流側の水平部との間の直線距離  $b$  に対する前記長さ  $a$  の比が、 $a/b \leq 1.2$  を満たすことを特徴とする燃料電池。

【請求項 2】 イオン伝導性電解質、前記イオン伝導性電解質を挟持するアノードとカソード、前記アノードに接するアノード側導電性セパレータ、および前記カソードに接するカソード側導電性セパレータからなる単セルを積層してなる燃料電池において、

前記アノード側導電性セパレータは、前記アノードと対面する部位に、前記アノードに燃料ガスを供給するための燃料ガス流通溝を有し、

前記カソード側導電性セパレータは、前記カソードと対面する部位に、前記カソードに酸化剤ガスを供給するための酸化剤ガス流通溝を有し、

前記燃料ガス流通溝および前記酸化剤ガス流通溝の少なくとも一方は、上流から下流に向かって蛇行しながら伸びるサーペントイン状であって、互いに平行で実質的に同じ長さ  $a$  を有する複数の水平部を有し、

互いに隣接する水平部間のリブ幅  $c$  の前記長さ  $a$  に対する比が、 $1/200 \leq$

$c/a \leq 1/20$  を満たすことを特徴とする燃料電池。

【請求項 3】 前記燃料ガス流通溝および前記酸化剤ガス流通溝の少なくとも一方は、溝の深さが 0.7 mm 以上、1.1 mm 以下である請求項 1 または 2 記載の燃料電池。

【請求項 4】 前記燃料ガス流通溝および前記酸化剤ガス流通溝の少なくとも一方は、一本当たりの溝の等価直径が 0.79 mm 以上、1.30 mm 以下である請求項 1～3 のいずれかに記載の燃料電池。

【請求項 5】 前記燃料ガス流通溝を流れる燃料ガスおよび前記酸化剤ガス流通溝を流れる酸化剤ガスの少なくとも一方の圧力損失が、1.5 kPa 以上である請求項 1～4 のいずれかに記載の燃料電池。

【請求項 6】 前記アノードおよび前記カソードが、それぞれガス拡散層および前記ガス拡散層に接する触媒反応層からなり、前記ガス拡散層の少なくとも一方の厚さが、100～400  $\mu\text{m}$  である請求項 1～5 のいずれかに記載の燃料電池。

【請求項 7】 前記アノードおよび前記カソードが、それぞれガス拡散層および前記ガス拡散層に接する触媒反応層からなり、前記ガス拡散層の少なくとも一方の面方向におけるドライガススペースのガス透過率が、 $2 \times 10^{-6} \sim 2 \times 10^{-8} \text{ m}^2 / (\text{Pa} \cdot \text{sec})$  である請求項 1～6 のいずれかに記載の燃料電池。

【請求項 8】 前記燃料ガス流通溝を流れる燃料ガス流量  $e$  と前記アノードを流れる伏流ガス流量  $f$  との比が、 $0.05 \leq f/e \leq 0.43$  を満たす請求項 1～7 のいずれかに記載の燃料電池。

【請求項 9】 前記酸化剤ガス流通溝を流れる酸化剤ガス流量  $e$  と前記カソードを流れる伏流ガス流量  $f$  との比が、 $0.05 \leq f/e \leq 0.43$  を満たす請求項 1～8 のいずれかに記載の燃料電池。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、ポータブル電源、電気自動車用電源、コージェネシステム等に使用するイオン伝導性電解質を具備する燃料電池、特に水素イオン伝導性高分子電解

質膜を用いた燃料電池に関する。

#### 【0002】

##### 【従来の技術】

燃料電池は、水素を含有する燃料ガスと、空気など酸素を含有する酸化剤ガスとを、電気化学的に反応させることで、電力と熱とを同時に発生させるものである。その一般的な構造は、まず、水素イオンを選択的に輸送する高分子電解質膜の両面に、白金等の貴金属触媒を担持したカーボン粉末を主成分とする触媒反応層を形成する。次に、触媒反応層の外面に、ガス通気性と電子伝導性とを併せ持つ、例えばカーボンペーパーやカーボクロスでガス拡散層を形成する。このガス拡散層と触媒反応層との組み合わせが電極となる。

#### 【0003】

次に、供給するガスが外にリークしたり、2種類のガスが互いに混合しないように、電極の周囲には高分子電解質膜を挟んでシール材やガスケットを配置する。予めシール材やガスケットを電極および高分子電解質膜と一体化したものを電解質膜-電極接合体(MEA)と呼ぶ。MEAの外側には、これを機械的に固定するとともに、隣接したMEAを互いに電氣的に直列に接続するための導電性セパレータを配置する。セパレータのMEAとの接触面には、電極に燃料ガスまたは酸化剤ガスを供給し、生成ガスや余剰ガスを運び去るためのガス流路を形成する。ガス流路はセパレータと別に設けることもできるが、セパレータの表面に溝を設けてガス流路とする方式が一般的である。

#### 【0004】

この溝にガスを供給するためは、ガスを供給する配管を燃料電池が具備するセパレータの枚数に分岐し、その分岐先を直接セパレータの溝につなぎ込む配管治具が必要となる。このような治具を外部マニホルドと呼ぶ。外部マニホルドよりも構造を簡単にした内部マニホルドと呼ばれる形式のものもある。内部マニホルドとは、ガス流路を形成したセパレータにガス流路の出入り口と連通する貫通孔を設け、この貫通孔から直接ガスを供給するものである。

#### 【0005】

燃料電池は、運転中に発熱するので、電池を良好な温度に維持するために冷却

する必要がある。通常、1～3セル毎に冷却水を流す冷却部をセパレータとセパレータとの間に挿入するが、セパレータの背面に冷却水流路を設けて冷却部とする場合が多い。MEAとセパレータは、冷却部を介して交互に重ねていき、10～200のMEAが積層される。こうして得られた積層体を、集電板と絶縁板を介して一对の端板で挟み、締結ボルトで両端から固定したものが一般的な積層電池である。

#### 【0006】

積層電池を端板で固定するのは、電解質膜と電極とセパレータとの接触抵抗を低減するため、さらにはシール材やガスケットのガスシール性を確保するためであり、通常10kg/cm<sup>2</sup>程度の圧力がかけられる。そのため機械的強度に優れた金属材料で端板を作製し、締結ボルトとバネを組み合わせて端板を固定するのが一般的である。また、加湿されたガスや冷却水が端板の一部に接するため、耐食性の観点から、金属材料の中でも耐食性に優れるステンレス鋼が端板に使用される。一方、集電板には、カーボン材料よりも導電性の高い金属材料が用いられる。接触抵抗の観点から、金属材料に表面処理を施して使用する場合もある。一对の端板は、締結ボルトを介して電氣的に接続されるため、集電板と端板との間には絶縁板が挿入される。

#### 【0007】

このような燃料電池に用いるセパレータは、導電性が高く、高いガス気密性を有し、かつ、高い耐食性（耐酸性）を有する必要がある。このような理由により、セパレータには、表面に切削加工でガス流通溝を形成したガス不透過性の緻密なカーボン板や、バインダーと黒鉛粉末からなる混合物をプレス金型で加工した後、加熱焼成した成形材料が用いられている。

#### 【0008】

近年、カーボン材料の代わりにステンレス鋼などの金属板をセパレータに用いる試みが行われている。金属板からなるセパレータは、高温で酸化雰囲気曝されたり、長期間使用したりすると、腐食する。金属板が腐食すると、腐食部分の電気抵抗が増大し、電池の出力が低下する。また、溶出した金属イオンが高分子電解質に拡散し、そのイオン交換サイトにトラップされ、結果的に高分子電解質

自身のイオン伝導性が低下する。このような劣化を避けるために、金属板の表面には金メッキが施されている。

#### 【0009】

##### 【発明が解決しようとする課題】

従来、高分子電解質には、パーフルオロカーボンスルホン酸からなる材料が主に用いられている。この高分子電解質は、水分を含んだ状態でイオン伝導性を発現するため、燃料ガスや酸化剤ガスを加湿してMEAに供給する必要がある。また、カソード側では反応によって水が生成するため、電池の動作温度より高い露点でガスを加湿すると、電池内部のガス流路や電極内部で結露が発生する。そして、水詰まりなどの現象によって電池性能が安定しなかったり、電池性能が低下したりするという問題がある。このような現象は、フラッディング現象と呼ばれる。

#### 【0010】

また、燃料電池を発電システムとして用いる場合、燃料ガスや酸化剤ガスの加湿をシステム化する必要があるが、システムの簡素化・効率化のためには、ガスの加湿露点を少しでも低くすることが好ましい。従って、フラッディング現象の防止、システムの簡素化・効率化などの観点から、燃料電池の温度よりも少し低い露点でガスを加湿してから燃料電池に供給するのが通常である。

#### 【0011】

一方、電池の高性能化のためには、高分子電解質膜のイオン伝導性を向上させる必要がある。そのためには、相対湿度100%近く、もしくは100%以上までガスを加湿することが好ましい。また、高分子電解質膜の耐久性の観点からも、高加湿状態のガスを供給することが好ましい。しかし、ガスを相対湿度100%近くまで加湿する場合、様々な課題が生じる。

#### 【0012】

一つ目は、前述のフラッディング現象の問題である。フラッディング現象を防止するための対策として、ガス流通溝に結露水を停滞させないこと、電極内部に結露水を停滞させないことの2点が考えられるが、前者が特に有効と考えられる。そこで、ガスの圧力損失を上げて、結露した水を吹き飛ばす手法が考えられる。



。しかしながら、ガスの圧力損失の増加は、ガス供給ブロウ、コンプレッサ等の燃料電池システムの補機動力を極端に増加させるため、システム効率の低化を招来する。従って、ガス流通溝に供給するガスの圧力損失を数十 kPa に設定することは現実的ではない。

#### 【0013】

二つ目は、電極（ガス拡散層や触媒反応層の担体カーボン）の水に対する濡れ性（接触角）が経時的に変化することにより、結露水の排出性が経時的に低くなり、電池の耐久特性に影響を及ぼす点である。

三つ目は、電極の水に対する濡れ性が経時的に変化することにより、セパレータのガス流路を流れるガス流量と、ガス拡散層を流れるガス流量との比が、経時的に変化することである。具体的には、ガス拡散層の濡れ性が経時的に増大し、ガス拡散層中で結露水の停滞量が増大すると、局所的に電極へのガス供給に滞りが生じる。ガス供給が滞った部分では電流密度が低下する。そのため、電極面内の電流密度が不均一になり、結果的に電池特性が低下する。

#### 【0014】

四つ目は、電極の水に対する濡れ性が経時的に変化することにより、セパレータの流路間にガスが伏流する度合いが変化することにある。仮にガス拡散層が無ければ、ガス流路に供給されたガスは必ずガス流路に沿って流れる。しかし、実際にはガス流路に隣接してガス拡散層が存在するため、ガス拡散層を介して（例えば、ガス流通溝間のリブ部分を越えて）、互いに隣接する流路間に伏流ガスが流れ込む。

#### 【0015】

例えば、上流から下流に向かって蛇行しながら伸びるサーペンタイン状であって、互いに平行な複数の水平部を有するガス流路の場合、いくつかの隣り合う2つの水平部では、ガスが流れる方向が対向している。そのため、ガス流路を通るガスの圧力損失と、ガス拡散層を介して上流部から下流部に流れる伏流ガスの圧力損失とが釣り合っていると考えられる。

#### 【0016】

ところが、ガス拡散層の濡れ性が経時的に増大し、ガス拡散層中での結露水の

停滞量が増大すると、ガス拡散層を介したガスの伏流が滞る。この現象は、当然、ガス拡散層を介して上流部から下流部に流れるガスの圧力損失が小さいほど、頻発する。サーペンタイン状のガス流路の場合には、特に、ガス流路の湾曲部近辺でガス拡散層を介したガスの伏流量が経時的に減少し、ガス供給が滞りやすい。ガス供給が滞ったガス拡散層部分では、電流密度が低下するため、電極面内の電流密度が不均一になり、結果的に電池特性が低下する。

#### 【0017】

フラッシング現象を防止するための対策として、ガス流通溝に結露水を停滞させないこと、電極内部に結露水を停滞させないことの2点が考えられる。また、ガス流通溝に水を停滞させないことが特に有効と考えられる。そのためには、基本的にガス流通溝に供給するガスの圧力損失を大きくすることが効果的であるが、前述のような数十kPaをこえる高い圧力損失でガスを供給することは現実的ではない。

#### 【0018】

##### 【課題を解決するための手段】

本発明は、上記を鑑みたものであり、前記イオン伝導性電解質を挟持するアノードとカソード、前記アノードに接するアノード側導電性セパレータ、および前記カソードに接するカソード側導電性セパレータからなる単セルを積層してなる燃料電池において、前記アノード側導電性セパレータは、前記アノードと対面する部位に、前記アノードに燃料ガスを供給するための燃料ガス流通溝を有し、前記カソード側導電性セパレータは、前記カソードと対面する部位に、前記カソードに酸化剤ガスを供給するための酸化剤ガス流通溝を有し、前記燃料ガス流通溝および前記酸化剤ガス流通溝の少なくとも一方は、上流から下流に向かって蛇行しながら伸びるサーペンタイン状であって、互いに平行で実質的に同じ長さ $a$ を有する複数の水平部を有し、前記複数の水平部のうち、最上流側の水平部と最下流側の水平部との間の直線距離 $b$ に対する前記長さ $a$ の比が、 $a/b \leq 1.2$ を満たすことを特徴とする燃料電池に関する。

#### 【0019】

本発明は、また、イオン伝導性電解質、前記イオン伝導性電解質を挟持するア

ノードとカソード、前記アノードに接するアノード側導電性セパレータ、および前記カソードに接するカソード側導電性セパレータからなる単セルを積層してなる燃料電池において、前記アノード側導電性セパレータは、前記アノードと対面する部位に、前記アノードに燃料ガスを供給するための燃料ガス流通溝を有し、前記カソード側導電性セパレータは、前記カソードと対面する部位に、前記カソードに酸化剤ガスを供給するための酸化剤ガス流通溝を有し、前記燃料ガス流通溝および前記酸化剤ガス流通溝の少なくとも一方は、上流から下流に向かって蛇行しながら伸びるサーペンタイン状であって、互いに平行で実質的に同じ長さ  $a$  を有する複数の水平部を有し、互いに隣接する水平部間のリブ幅  $c$  の前記長さ  $a$  に対する比が、 $1/200 \leq c/a \leq 1/20$  を満たすことを特徴とする燃料電池に関する。

#### 【0020】

前記燃料ガス流通溝および前記酸化剤ガス流通溝の少なくとも一方は、溝の深さが  $0.7\text{ mm}$  以上、 $1.1\text{ mm}$  以下であることが好ましい。

前記燃料ガス流通溝および前記酸化剤ガス流通溝の少なくとも一方は、一本当たりの溝の等価直径が  $0.79\text{ mm}$  以上、 $1.30\text{ mm}$  以下であることが好ましい。

前記燃料ガス流通溝を流れる燃料ガスおよび前記酸化剤ガス流通溝を流れる酸化剤ガスの少なくとも一方の圧力損失は、 $1.5\text{ kPa}$  以上であることが好ましい ( $1\text{ kPa} = 100\text{ mmAq}$ )。

前記アノードおよび前記カソードは、それぞれガス拡散層および前記ガス拡散層に接する触媒反応層からなり、前記ガス拡散層の少なくとも一方の厚さが、 $100 \sim 400\text{ }\mu\text{m}$  であることが好ましい。

前記ガス拡散層の少なくとも一方の面方向のドライガス（水分をほぼ含まない燃料ガスまたは酸化剤ガス）ベースのガス透過率は、 $2 \times 10^{-6} \sim 2 \times 10^{-8}\text{ m}^2/(\text{Pa} \cdot \text{sec})$  であることが好ましい。

#### 【0021】

前記燃料ガス流通溝を流れる燃料ガス流量  $e$  と前記アノードを流れる伏流ガス流量  $f$  との比は、 $0.05 \leq f/e \leq 0.43$  を満たすことが好ましい。

前記酸化剤ガス流通溝を流れる酸化剤ガス流量  $e$  と前記カソードを流れる伏流ガス流量  $f$  との比は、 $0.05 \leq f/e \leq 0.43$  を満たすことが好ましい。

ここで、伏流ガスとは、電極の面方向に沿って、ガス流路の上流から下流に向かってガス拡散層を流れるガスを言う。

#### 【0022】

本発明によれば、高い圧力損失でガスを供給することなく、相対湿度 100% 近く、もしくは 100% 以上にまで加湿した燃料ガスや酸化剤ガスを燃料電池に供給する場合に発生する上記問題を解決し、もしくは抑制することが可能である。

#### 【0023】

##### 【発明の実施の形態】

本発明の燃料電池においては、アノード側導電性セパレータが有する燃料ガス流通溝およびカソード側導電性セパレータが有する酸化剤ガス流通溝の少なくとも一方が、上流から下流に向かって蛇行しながら伸びるサーペントイン状を有する。前記溝は、互いに平行で実質的に同じ長さ  $a$  を有する複数の水平部を有する。

#### 【0024】

ここで、電極の水に対する濡れ性の経時変化により、結露水の停滞状況は経時的に変化するが、これを抑制するためには、ガス流通溝の上記複数の水平部の長さを短くし、最上流側の水平部と最下流側の水平部との間の直線距離  $b$  を長くし、互いに隣接する水平部間のリブ幅を広くすることが望ましい。しかし、サーペントイン状のガス流通溝の場合、水平部の長さが短すぎると、一定の長さの流路を確保するためには湾曲部の数が多くなり、ガスの圧力損失が上昇する。また、互いに隣接する水平部間のリブ幅が広すぎると、リブ部に押されたガス拡散層部分へのガスの供給が阻害される。従って、水平部の長さと湾曲部の数が適切な範囲となるように溝を設計する必要がある。

なお、結露水が停滞した状態（2層流）では、等価直径の大きな流路ほど、水の排出がスムーズに行われる。ガス拡散層を伏流するガス流量が増えると、水の排出性が悪くなる。リブ幅を広くすると、伏流が抑制されるため、水の排出性が

向上する。

#### 【0025】

かかる観点から、本発明の第1の形態においては、前記複数の水平部のうち、最上流側の水平部と最下流側の水平部との間の直線距離  $b$  に対する前記長さ  $a$  の比が  $a/b \leq 1.2$  を満たすように溝形状を設計する。また、本発明の第2の形態においては、互いに隣接する水平部間のリブ幅  $c$  の前記長さ  $a$  に対する比が、 $1/200 \leq c/a \leq 1/20$  を満たすように溝形状を設計する。ここで、比  $a/b$  が  $1.2$  を超えると、水平部の長さが長くなり、湾曲部間の水平部の圧力損失が大きくなり、ガスの伏流量が相対的に増加する。また、水平部の長さが短くなりすぎると、湾曲部の数が多くなりすぎるため、好ましくは  $0.3 \leq a/b \leq 1.2$  である。また、比  $c/a$  が  $1/200$  未満では、湾曲部の数が多くなってガスの圧力損失が上昇し、 $1/20$  を超えると、ガス拡散層へのガスの供給が不十分になる。

#### 【0026】

次に、ガス流通溝を結露水とガスが流れる場合には、ガス流通溝の壁面と水との接触角や表面張力と、ガス流通溝の等価直径が、水の停滞（フラッディング）に大きな影響を及ぼすと考えられる。特に、ガス流通溝の壁面を構成する材料としてカーボンを用いた場合には、水とカーボンとの接触角が限定されることから、ガス流通溝の等価直径が水の停滞を大きく左右する。

#### 【0027】

ガス流通溝の等価直径は、溝深さと溝幅から、

$$\text{等価直径} = 2 \times (\text{溝深さ} \times \text{溝幅} / \pi)^{1/2}$$

のように算出される。電池特性を維持しつつガス流通溝での水の停滞を効果的に防止するためには、溝深さを  $0.7\text{ mm}$  以上、 $1.1\text{ mm}$  以下とすることが望ましい。溝深さが  $0.7\text{ mm}$  未満では、結露水を排出するために極端に大きな圧力損失が必要となり、 $1.1\text{ mm}$  を超えると、セパレータの板厚が厚くなり、スタックの体積効率が現実的でなくなる。一方、ガス流通溝の溝幅は  $1.5\text{ mm}$  未満であることが好ましい。溝幅が  $1.5\text{ mm}$  以上になると、電池特性が低下しやすい。

## 【0028】

溝の等価直径は、0.79 mm以上、1.30 mm以下であることが望ましい。溝の等価直径が0.79 mm未満になると、結露水を排出するために極端に大きな圧力損失が必要となり、1.30 mmを超えると、電極とセパレータとの間隙が広くなり、接触抵抗が増大する。なお、ガス流通溝の等価直径を0.78 mm以上、圧力損失を1.5 kPa以上とすると、ガス流通溝での水の停滞をほぼ防止できる。しかし、圧力損失が同じく1.5 kPa以上の場合でも、一本当たりの溝の等価直径が0.78 mm未満の場合には、水の停滞が発生しやすい。また、等価直径が同じく0.78 mm以上であっても、溝幅が広く、溝深さが0.7 mm未満と浅い場合には、水の停滞が発生しやすい。

## 【0029】

電極内での水の停滞や電極の濡れ性の経時変化は、ガス拡散層内での水の停滞にほぼ支配される。ガス拡散層は、比較的大きなガス透過率を有し、可能な範囲で薄い方が好ましい。しかしながら、ガス拡散層は、電極の集電効果を兼ね備えているため、面積方向の導電性を損なうほど薄く（100  $\mu$ m未満）になると、電池特性が低下する。また、ガス拡散層の厚さが400  $\mu$ mを超えると、ガス拡散層内の水の排出性が悪くなると同時に、伏流ガス量が大きくなり過ぎる。従って、ガス拡散層の厚さは、100～400  $\mu$ mであることが好ましい。また、セパレータのリブ部で押されたガス拡散層の厚さは、100～250  $\mu$ mであることが好ましい。さらに、ガス拡散層の面方向のドライガスベースのガス透過率は、 $2 \times 10^{-6} \sim 2 \times 10^{-8} \text{ m}^2 / (\text{Pa} \cdot \text{sec})$ であることが好ましい。ガス透過率が $2 \times 10^{-6} \text{ m}^2 / (\text{Pa} \cdot \text{sec})$ 未満では、電極の触媒層へのガスの供給が阻害される傾向があり、 $2 \times 10^{-8} \text{ m}^2 / (\text{Pa} \cdot \text{sec})$ を超えると、ガス拡散層内の伏流ガス量が大きくなり過ぎる。

## 【0030】

ガス拡散層を流れる伏流ガス流量（ $f$ ）とガス流通溝を流れるガス流量（ $e$ ）との関係においては、ガス流通溝を流れるガス流量が支配的であることが好ましい。両者の関係を特に良好に保持するためには、 $0.05 \leq f/e \leq 0.43$ を満たすことが好ましい。 $f/e$ が0.05未満では、電極の触媒層へのガスの供

給が阻害される傾向があり、0.43を超えると、ガス拡散層内の伏流ガス量が大き過ぎる。

### 【0031】

#### 【実施例】

##### 《参考例1》

緻密でガス透過性のないカーボン板の表面に切削加工によりガス流通溝を形成することにより、導電性セパレータを作製した。ガス流通溝の溝幅、溝深さ、および溝断面積から算出した溝の等価直径をパラメータとして、これらを変化させて各種のセパレータを試作した。なお、ガスの流路形状は、溝幅等を変更したこと以外、実施例1の図2とほぼ同様である。

溝幅は、切削加工の都合上、0.5mmより細くすることが困難であったため、0.5mm以上とした。また、溝幅を1.5mm以上にすると燃料電池の性能が低下することを確認したため、溝幅は0.5～1.5mmの範囲で変化させた。溝深さは、1.2mm以上になると、セパレータの板厚が厚くなるため、実用的ではない上、燃料電池の性能が低下することを確認したため、溝深さは1.2mm以下とした。

### 【0032】

次に、試作した各セパレータの周縁部にガスケットを配し、セパレータ表面に透明なアクリル板を乗せて、ガス流通溝をガスが流れる状態を観察できるようにした。セパレータのガス流通溝には、水滴を均一に注入した。そして、1kPa、1.5kPa、2kPa、5kPa、または10kPaの圧力損失で窒素ガスまたは空気をガス流通溝に注入した。そして、ガス流通溝内の水滴が素早く除去可能かどうかを目視で確認した。結果を表1～表7に示す。

### 【0033】

【表 1】

等価直径 (mm)	0.56		0.67		0.80		0.87		0.98	
溝幅／溝深さ (mm)	幅 0.5	深さ 0.5	幅 0.7	深さ 0.5	幅 1.0	深さ 0.5	幅 1.2	深さ 0.5	幅 1.5	深さ 0.5
100mmAq	×		×		×		×		×	
150mmAq	×		×		×		×		×	
200mmAq	×		×		×		×		×	
500mmAq	×		×		×		△		○	
1000mmAq	×		×		△		○		○	

×：水滴停滞、△：長時間かければ水滴除去、○：素早く水滴除去

【0034】

【表 2】

等価直径 (mm)	0.62		0.73		0.87		0.96		1.07	
溝幅／溝深さ (mm)	幅 0.5	深さ 0.6	幅 0.7	深さ 0.6	幅 1.0	深さ 0.6	幅 1.2	深さ 0.6	幅 1.5	深さ 0.6
100mmAq	×		×		×		×		×	
150mmAq	×		×		×		×		△	
200mmAq	×		×		×		△		△	
500mmAq	×		×		△		○		○	
1000mmAq	△		△		○		○		○	

×：水滴停滞、△：長時間かければ水滴除去、○：素早く水滴除去

【0035】

【表 3】

等価直径 (mm)	0.67		0.79		0.94		1.03		1.16	
溝幅／溝深さ (mm)	幅 0.5	深さ 0.7	幅 0.7	深さ 0.7	幅 1.0	深さ 0.7	幅 1.2	深さ 0.7	幅 1.5	深さ 0.7
100mmAq	×		×		×		×		×	
150mmAq	×		○		○		○		○	
200mmAq	△		○		○		○		○	
500mmAq	△		○		○		○		○	
1000mmAq	○		○		○		○		○	

×：水滴停滞、△：長時間かければ水滴除去、○：素早く水滴除去

【0036】



【表 4】

等価直径 (mm)	0.71		0.84		1.01		1.11		1.24	
溝幅／溝深さ (mm)	幅 0.5	深さ 0.8	幅 0.7	深さ 0.8	幅 1.0	深さ 0.8	幅 1.2	深さ 0.8	幅 1.5	深さ 0.8
100mmAq	×		×		×		×		×	
150mmAq	×		○		○		○		○	
200mmAq	△		○		○		○		○	
500mmAq	△		○		○		○		○	
1000mmAq	○		○		○		○		○	

×：水滴停滞、△：長時間かければ水滴除去、○：素早く水滴除去

【0037】

【表 5】

等価直径 (mm)	0.80		0.94		1.13		1.24		1.38	
溝幅／溝深さ (mm)	幅 0.5	深さ 1.0	幅 0.7	深さ 1.0	幅 1.0	深さ 1.0	幅 1.2	深さ 1.0	幅 1.5	深さ 1.0
100mmAq	×		×		×		×		△	
150mmAq	○		○		○		○		○	
200mmAq	○		○		○		○		○	
500mmAq	○		○		○		○		○	
1000mmAq	○		○		○		○		○	

×：水滴停滞、△：長時間かければ水滴除去、○：素早く水滴除去

【0038】

【表 6】

等価直径 (mm)	0.83		0.99		1.18		1.30		1.45	
溝幅／溝深さ (mm)	幅 0.5	深さ 1.1	幅 0.7	深さ 1.1	幅 1.0	深さ 1.1	幅 1.2	深さ 1.1	幅 1.5	深さ 1.1
100mmAq	×		×		×		×		△	
150mmAq	○		○		○		○		○	
200mmAq	○		○		○		○		○	
500mmAq	△		○		○		○		○	
1000mmAq	○		○		○		○		○	

×：水滴停滞、△：長時間かければ水滴除去、○：素早く水滴除去

【0039】

【表 7】

等価直径 (mm)	0. 87		1. 03		1. 24		1. 35		1. 51	
溝幅／溝深さ (mm)	幅 0. 5	深さ 1. 2	幅 0. 7	深さ 1. 2	幅 1. 0	深さ 1. 2	幅 1. 2	深さ 1. 2	幅 1. 5	深さ 1. 2
100mmAq	×		×		×		△		△	
150mmAq	○		○		○		○		○	
200mmAq	○		○		○		○		○	
500mmAq	△		○		○		○		○	
1000mmAq	○		○		○		○		○	

×：水滴停滞、△：長時間かければ水滴除去、○：素早く水滴除去

## 【0 0 4 0】

## 《参考例 2》

参考例 1 において良好な結果が得られた試作セパレータのなかで、最も小さな等価直径 0. 7 9 mm（溝幅：0. 7 mm、溝深さ：0. 7 mm、表 3 参照）を有するセパレータと同じセパレータを用意した。

また、参考例 1 において良好な結果が得られた試作セパレータのなかで、最も大きな等価直径 1. 3 0 mm（溝幅：1. 2 mm、溝深さ：1. 1 mm、表 6 参照）を有するセパレータと同じセパレータを用意した。なお、溝幅が 1. 2 mm を超えると十分な電池性能が得られないと考えられたため、ここでは溝幅が 1. 2 mm で最も大きな等価直径を有するセパレータを選択した。

さらに、参考例 1 において良好な結果が得られており、かつ、上記のほぼ中間の等価直径 1. 1 3 mm（溝幅：1 mm、溝深さ：1 mm、表 5 参照）を有するセパレータと同じセパレータを用意した。

## 【0 0 4 1】

一方、ガス拡散層となるカーボンペーパー（東レ株式会社製）およびカーボンクロスを用意した。カーボンペーパーおよびカーボンクロスのいずれを用いた場合にも、ガス拡散層の厚さが 9 0  $\mu$  m 以下では、燃料電池の製造工程時のハンドリングが悪くなった。その上、ガス拡散層の面方向の導電性が充分でなく、電池特性が低下することから、1 0 0  $\mu$  m 以上の厚さのガス拡散層が好ましいことを確認した。

## 【0 0 4 2】

次に、試作したセパレータの周縁部にガスケットを配し、次いで、セパレータのガス流通溝側の表面にガス拡散層を配した。さらに、ガス拡散層上に透明なアクリル板を乗せて、ガス流通溝をオイルミストを添加した窒素または空気が流れる状態を観察できるようにした。次いで、ガス拡散層とセパレータとの接触部分に、面積当たり  $7 \text{ kg/cm}^2$  の圧力がかかるように、アクリル板とセパレータとを締結した。ガス拡散層のガス透過率は、締結圧によって変化し、締結圧が高くなるほどガス透過率は低下する。本参考例では、締結圧が  $7 \text{ kg/cm}^2$  の場合に  $1.2 \times 10^{-7} \text{ m}^2/(\text{Pa} \cdot \text{sec})$  のガス透過率を有するカーボンクロスを用いた。

#### 【0043】

こうして得られたガス拡散層を配したセパレータのガス流通溝に窒素または空気を注入した。そして、ガスの圧力損失を測定した。一方、ガス拡散層を用いずに、参考例1と同様に、周縁部にガスケットを配したセパレータ表面に透明なアクリル板を乗せて、ガス流通溝にガスを注入し、ガスの圧力損失を測定した。ここでは、ガス拡散層を配したセパレータの場合と同じ流量でガス流通溝にガスを注入した。そして、ガス拡散層を用いた場合と用いなかった場合の両方における圧力損失から、セパレータのガス流通溝を流れるガス量と、ガス拡散層を流れる伏流ガス量との比を求めた。また、ガスの伏流状態を観察した。結果を表8から表10に示す。

#### 【0044】

【表8】

GDL の厚さ ( $\mu\text{m}$ )	100	200	300	400	450
ガス流量比 $f/e$	0.10	0.18	0.31	0.50	0.76
ガスの 伏流状態	○	○	○	×	×

GDL: ガス拡散層

×: ガス入口からガス出口にかけ、ガスが GDL 中をショートカット伏流する状態

○: ガスが流路に沿って均等に流れる状態

#### 【0045】

【表 9】

GDL の厚さ ( $\mu\text{m}$ )	100	200	300	400	450
ガス流量比 $f/e$	0.07	0.15	0.29	0.46	0.70
ガスの 伏流状態	○	○	○	×	×

GDL: ガス拡散層

×: ガス入口からガス出口にかけ、ガスが GDL 中をショートカット伏流する状態

○: ガスが流路に沿って均等に流れる状態

【0046】

【表 10】

GDL の厚さ ( $\mu\text{m}$ )	100	200	300	400	450
ガス流量比 $f/e$	0.05	0.11	0.25	0.43	0.66
ガスの 伏流状態	○	○	○	○	×

GDL: ガス拡散層

×: ガス入口からガス出口にかけ、ガスが GDL 中をショートカット伏流する状態

○: ガスが流路に沿って均等に流れる状態

【0047】

別途燃料電池を用いて実施した試験の結果、ガス流通溝の入口から出口にかけて、ガスがガス流通溝間のリブ部分を越えて伏流（以下、ショートカット伏流という。）する状態では、ガスが流れる状態の経時変化が激しく、初期の電池特性ならびに電池性能の耐久性に悪影響を及ぼすことが見出された。

【0048】

## 《参考例 3》

参考例 1、2 で用いた等価直径 1.13 mm（溝幅: 1 mm、溝深さ: 1 mm）のガス流通溝を有するセパレータと同様のセパレータを用意した。また、ガス拡散層として、厚さ 200  $\mu\text{m}$  以上の種々のカーボンをクロスを用意した。これらのカーボンをクロスを用いたこと以外、参考例 2 と同様の方法で、セパレータのガス流通溝を流れるガス量と、ガス拡散層を流れる伏流ガス量との比を求めた。得られた比と、ガスの伏流状態と、カーボンのガス透過率との関係を表 11 に示す。

【0049】

【表11】

GDL のガス透過率 ( $\text{m}^3/\text{m}^2/\text{sec}/\text{Pa}\cdot\text{m}$ )	$3\times 10^{-6}$	$2\times 10^{-6}$	$2\times 10^{-7}$	$2\times 10^{-8}$	$1\times 10^{-8}$
ガス流量比 $f/e$	0.52	0.43	0.2	0.05	0.03
ガスの 伏流状態	×	○	○	○	△

GDL: ガス拡散層

×: ガス入口からガス出口にかけ、ガスが GDL 中をショートカット伏流する状態

△: ガスが GDL 中をほとんど伏流しない状態

○: ガスが流路に沿って均等に流れる状態

【0050】

別途燃料電池を用いて実施した試験の結果、ガス流通溝の入口から出口にかけてガス拡散層をガスがショートカット伏流する状態では、ガスが流れる状態の経時変化が激しく、初期の電池特性ならびに電池性能の耐久性に悪影響を及ぼすことが見出された。また、ガス拡散層をガスがほとんど伏流しない状態でも、逆に電池性能が低下することが見出された。

【0051】

## 《実施例1》

## (i) 電極の作製

アセチレンブラック粉末に、平均粒径約  $30\text{ \AA}$  の白金粒子を担持させて、触媒粉末を調製した。白金量は、アセチレンブラック粉末 100 重量部あたり、25 重量部とした。この触媒粉末をイソプロパノールと混合して分散液 A とした。また、パーフルオロカーボンスルホン酸の粉末をエチルアルコールと混合した分散液 B を用意した。そして、分散液 A と分散液 B とを混合して触媒ペーストを得た。

【0052】

一方、ガス拡散層となるカーボנקロスを用意した。カーボנקロスは、外寸  $12\text{ cm}\times 12\text{ cm}$ 、厚さ  $200\text{ }\mu\text{m}$ 、ガス透過率  $1.2\times 10^{-7}\text{ m}^2/(\text{Pa}\cdot\text{sec})$  のものを用いた。このカーボנקロスの触媒反応層を形成する側の面に、カーボンプラック粉末とポリテトラフルオロエチレン (PTFE) の水性分

散液（ダイキン工業（株）製のD-1（商品名））との混合物を塗布し、400℃で30分間焼成して、カーボクロス上に撥水層を付与した。この撥水層上に、上記の触媒ペーストをスクリーン印刷法を用いて塗布することで触媒反応層を形成した。このようにして、カーボクロスとその上に撥水層を介して形成された触媒反応層からなる電極を得た。電極中に含まれる面積あたりの白金量は0.3 mg/cm<sup>2</sup>、パーフルオロカーボンスルホン酸の量は1.0 mg/cm<sup>2</sup>とした。

### 【0053】

#### (ii) MEAの作製

図1を参照しながら説明する。

外寸が20 cm×20 cmのプロトン伝導性高分子電解質膜11の裏表両面に、触媒反応層12とガス拡散層13からなる一対の電極14を、触媒反応層12が電解質膜11に接するようにホットプレスで接合した。プロトン伝導性高分子電解質膜11には、パーフルオロカーボンスルホン酸を厚さ30 μmの薄膜に成形したものを用いた。次いで、電解質膜11の周縁部に、後述するセパレータに形成したものと同様の大きさのマニホールド穴をセパレータと同じ配置で形成した。そして、電極の周囲とマニホールド穴の周囲の電解質膜上に、バイトン社製のガスシール部材15を配して、電解質膜-電極接合体(MEA)16を得た。

### 【0054】

#### (iii) 導電性セパレータの作製

緻密でガス透過性のないカーボン板の表面に切削加工によりガス流通溝を形成することにより、導電性セパレータを作製した。ここでは、カーボン板の一方の面に図2、他方の面に図3に示すような溝を形成したセパレータ(X)と、カーボン板の一方の面に図2、他方の面に図4に示すような溝を形成したセパレータ(Y)と、カーボン板の一方の面に図3、他方の面に図4（ただしマニホールド穴の配置は異なる）に示すような溝を形成したセパレータ(Z)の3種類を作製した。図2、図3および図4に示す溝は、それぞれ酸化剤ガス流通溝、燃料ガス流通溝および冷却水流通溝とした。

### 【0055】

セパレータの大きさは、いずれも  $20\text{ cm} \times 20\text{ cm}$ 、厚さは  $3\text{ mm}$ とした。各セパレータの溝部 21a、21b、21cの溝幅は  $0.7\text{ mm}$ 、深さは  $0.7\text{ mm}$ で、断面は凹形状とし、溝一本当たりの等価直径は  $0.79\text{ mm}$ とした。ガス流通溝の形状は、上流から下流に向かって蛇行しながら伸びるサーペントイン状であり、このガス流通溝は、互いに平行で実質的に同じ長さ  $a$  を有する複数の水平部を有し、最上流側の水平部と最下流側の水平部との間の直線距離  $b$  に対する長さ  $a$  の比： $a/b$  は  $1.2$ とした。また、互いに隣接する水平部間のリブ 22a、22b、22cの幅  $c$  は  $1.2\text{ mm}$ であり、リブ幅  $c$  の長さ  $a$  に対する比： $c/a$  は  $1/30$ とした。

#### 【0056】

次いで、各セパレータに所定のマニホールド穴、すなわち酸化剤ガス注入口 23a、酸化剤ガス出口 23b、燃料ガス注入口 24a、燃料ガス出口 24b、冷却水注入口 25a、および冷却水出口 25bを形成した。なお、全てのセパレータの同じ位置に同じ大きさのマニホールド穴を形成した。また、各セパレータの四隅には締結ロッド孔 26を形成した。

#### 【0057】

##### (iv) 燃料電池の作製

上記の所定のセパレータ 2枚でMEAを挟持し、これを単セルとした。ただし、MEAの一方の面にはセパレータ(X)の酸化剤ガス流通溝を対面させ、他方の面にはセパレータ(Z)の燃料ガス流通溝を対面させた。この単セルのセパレータ(X)の燃料ガス流通溝に対面するように、別のMEAを配し、そのMEAの他方の面にはセパレータ(Y)の酸化剤ガス流通溝を対面させた。このような2セル構造のパターンを繰り返して、100セルからなる積層電池を作製した。そして、積層電池の両端部に、それぞれ表面を金メッキした銅製集電板と、PPS(ポリフェニレンスルフィド)製の絶縁板と、ステンレス鋼からなる端板とを順次に配し、締結ロッドで端板を固定した。この時の締結圧は、電極の面積当たり  $10\text{ kgf/cm}^2$ とした。

#### 【0058】

##### (v) 燃料電池の評価

このように作製した本実施例の高分子電解質型燃料電池を、70℃に保持し、カソード側に70℃の露点となるよう加湿・加温した水素ガスを、カソード側に70℃の露点となるよう加湿・加温した空気を供給した。その結果、電流を外部に出力しない無負荷時には、98Vの電池開放電圧を得た。

この燃料電池を、燃料利用率75%、酸素利用率50%、電流密度0.3A/cm<sup>2</sup>の条件で連続発電し、出力特性の時間変化を測定した。その結果、本実施例の燃料電池は、8000時間以上にわたって3.1kW以上(72V-43.2A)の出力を維持することを確認した。

#### 【0059】

##### 《実施例2》

セパレータの溝構造を変更したこと以外、実施例1と同様の燃料電池を作製した。ここで用いたセパレータは、溝部21a、21b、21cの溝幅を1.0mm、溝深さを1.0mmで、溝一本当たりの等価直径を1.13mmとしたこと以外、実施例1と同様の溝構造とした。

ガス流通溝の最上流側の水平部と最下流側の水平部との間の直線距離bに対する水平部の長さaの比：a/b、互いに隣接する水平部間のリブ22a、22b、22cの幅c、リブ幅cの長さaに対する比：c/aは、実施例1と同じとした。

#### 【0060】

このように作製した本実施例の高分子電解質型燃料電池を、70℃に保持し、カソード側に70℃の露点となるよう加湿・加温した水素ガスを、カソード側に70℃の露点となるよう加湿・加温した空気を供給した。その結果、電流を外部に出力しない無負荷時には、97.5Vの電池開放電圧を得た。

この燃料電池を、燃料利用率75%、酸素利用率50%、電流密度0.3A/cm<sup>2</sup>の条件で連続発電し、出力特性の時間変化を測定した。その結果、本実施例の燃料電池は、8000時間以上にわたって3.1kW以上(72.5V-43.2A)の出力を維持することを確認した。

#### 【0061】

##### 《実施例3》



セパレータの溝構造を変更したこと以外、実施例 1 と同様の燃料電池を作製した。ここで用いたセパレータは、溝部 21a、21b、21c の溝幅を 1.2 mm、溝深さを 1.1 mm で、溝一本当たりの等価直径を 1.30 mm としたこと以外、実施例 1 と同様の溝構造とした。

ガス流通溝の最上流側の水平部と最下流側の水平部との間の直線距離  $b$  に対する水平部の長さ  $a$  の比:  $a/b$ 、互いに隣接する水平部間のリブ 22a、22b、22c の幅  $c$ 、リブ幅  $c$  の長さ  $a$  に対する比:  $c/a$  は、実施例 1 と同じとした。

#### 【0062】

このように作製した本実施例の高分子電解質型燃料電池を、70℃に保持し、カソード側に 70℃の露点となるよう加湿・加温した水素ガスを、カソード側に 70℃の露点となるよう加湿・加温した空気を供給した。その結果、電流を外部に出力しない無負荷時には、98.5 V の電池開放電圧を得た。

この燃料電池を、燃料利用率 75%、酸素利用率 50%、電流密度 0.3 A/cm<sup>2</sup> の条件で連続発電し、出力特性の時間変化を測定した。その結果、本実施例の燃料電池は、8000 時間以上にわたって 3.1 kW 以上 (72.3 V - 43.2 A) の出力を維持することを確認した。

#### 【0063】

##### 《実施例 4》

セパレータの溝構造を変更したこと以外、実施例 1 と同様の燃料電池を作製した。ここで用いたセパレータは、溝部 21a、21b、21c の溝幅を 1.0 mm、溝深さを 1.0 mm で、溝一本当たりの等価直径を 1.13 mm とし、互いに隣接する水平部間のリブ 22a、22b、22c の幅  $c$  は 1.0 mm、リブ幅  $c$  の長さ  $a$  に対する比:  $c/a$  は 1/60 としたこと以外、実施例 1 と同様の溝構造とした。

ガス流通溝の最上流側の水平部と最下流側の水平部との間の直線距離  $b$  に対する水平部の長さ  $a$  の比:  $a/b$  は、実施例 1 と同じとした。

#### 【0064】

このように作製した本実施例の高分子電解質型燃料電池を、70℃に保持し、

カソード側に 70℃の露点となるよう加湿・加温した水素ガスを、カソード側に 70℃の露点となるよう加湿・加温した空気を供給した。その結果、電流を外部に出力しない無負荷時には、98.5Vの電池開放電圧を得た。

この燃料電池を、燃料利用率 75%、酸素利用率 50%、電流密度 0.3 A/cm<sup>2</sup>の条件で連続発電し、出力特性の時間変化を測定した。その結果、本実施例の燃料電池は、8000時間以上にわたって 3.1 kW以上 (72.5 V - 43.2 A) の出力を維持することを確認した。

#### 【0065】

##### 《実施例 5》

セパレータの溝構造を変更したこと以外、実施例 1 と同様の燃料電池を作製した。ここで用いたセパレータは、溝部 21a、21b、21c の溝幅を 1.0 mm、溝深さを 1.0 mm で、溝一本当たりの等価直径を 1.13 mm とし、互いに隣接する水平部間のリブ 22a、22b、22c の幅 c は 0.8 mm、リブ幅 c の長さ a に対する比: c/a は 1/200 としたこと以外、実施例 1 と同様の溝構造とした。

ガス流通溝の最上流側の水平部と最下流側の水平部との間の直線距離 b に対する水平部の長さ a の比: a/b は、実施例 1 と同じとした。

#### 【0066】

このように作製した本実施例の高分子電解質型燃料電池を、70℃に保持し、カソード側に 70℃の露点となるよう加湿・加温した水素ガスを、カソード側に 70℃の露点となるよう加湿・加温した空気を供給した。その結果、電流を外部に出力しない無負荷時には、98.5Vの電池開放電圧を得た。

この燃料電池を、燃料利用率 75%、酸素利用率 50%、電流密度 0.3 A/cm<sup>2</sup>の条件で連続発電し、出力特性の時間変化を測定した。その結果、本実施例の燃料電池は、8000時間以上にわたって 3.1 kW以上 (72.3 V - 43.2 A) の出力を維持することを確認した。

#### 【0067】

##### 《実施例 6》

セパレータの溝構造を変更したこと以外、実施例 1 と同様の燃料電池を作製し

た。ここで用いたセパレータは、溝部 21a、21b、21c の溝幅を 1.0 mm、溝深さを 1.0 mm で、溝一本当たりの等価直径を 1.13 mm とし、ガス流通溝の最上流側の水平部と最下流側の水平部との間の直線距離 b に対する水平部の長さ a の比： $a/b$  は 0.8 とし、互いに隣接する水平部間のリブ 22a、22b、22c の幅 c は 1.0 mm、リブ幅 c の長さ a に対する比： $c/a$  は  $1/50$  としたこと以外、実施例 1 と同様の溝構造とした。

#### 【0068】

このように作製した本実施例の高分子電解質型燃料電池を、70℃に保持し、カソード側に 70℃の露点となるよう加湿・加温した水素ガスを、カソード側に 70℃の露点となるよう加湿・加温した空気を供給した。その結果、電流を外部に出力しない無負荷時には、9.9 V の電池開放電圧を得た。

この燃料電池を、燃料利用率 75%、酸素利用率 50%、電流密度  $0.3 \text{ A/cm}^2$  の条件で連続発電し、出力特性の時間変化を測定した。その結果、本実施例の燃料電池は、8000 時間以上にわたって 3.1 kW 以上 (73 V - 43.2 A) の出力を維持することを確認した。

#### 【0069】

##### 《実施例 7》

セパレータの溝構造を変更したこと以外、実施例 1 と同様の燃料電池を作製した。ここで用いたセパレータは、溝部 21a、21b、21c の溝幅を 1.0 mm、溝深さを 1.0 mm で、溝一本当たりの等価直径を 1.13 mm とし、ガス流通溝の最上流側の水平部と最下流側の水平部との間の直線距離 b に対する水平部の長さ a の比： $a/b$  は 0.6 とし、互いに隣接する水平部間のリブ 22a、22b、22c の幅 c は 1.0 mm、リブ幅 c の長さ a に対する比： $c/a$  は  $1/40$  としたこと以外、実施例 1 と同様の溝構造とした。

#### 【0070】

このように作製した本実施例の高分子電解質型燃料電池を、70℃に保持し、カソード側に 70℃の露点となるよう加湿・加温した水素ガスを、カソード側に 70℃の露点となるよう加湿・加温した空気を供給した。その結果、電流を外部に出力しない無負荷時には、98.5 V の電池開放電圧を得た。

この燃料電池を、燃料利用率 75%、酸素利用率 50%、電流密度  $0.3 \text{ A/cm}^2$  の条件で連続発電し、出力特性の時間変化を測定した。その結果、本実施例の燃料電池は、8000 時間以上にわたって  $3.1 \text{ kW}$  以上 ( $72 \text{ V}-43.2 \text{ A}$ ) の出力を維持することを確認した。

#### 【0071】

##### 《比較例 1》

セパレータの溝構造を変更したこと以外、実施例 1 と同様の燃料電池を作製した。ここで用いたセパレータは、溝部 21a、21b、21c の溝幅を  $0.6 \text{ mm}$ 、溝深さを  $0.6 \text{ mm}$  で、溝一本当たりの等価直径を  $0.68 \text{ mm}$  とし、ガス流通溝の最上流側の水平部と最下流側の水平部との間の直線距離  $b$  に対する水平部の長さ  $a$  の比:  $a/b$  は  $1.3$  とし、互いに隣接する水平部間のリブ 22a、22b、22c の幅  $c$  は  $0.5 \text{ mm}$ 、リブ幅  $c$  の長さ  $a$  に対する比:  $c/a$  は  $1/220$  としたこと以外、実施例 1 と同様の溝構造とした。

#### 【0072】

このように作製した本実施例の高分子電解質型燃料電池を、 $70^\circ\text{C}$  に保持し、カソード側に  $70^\circ\text{C}$  の露点となるよう加湿・加温した水素ガスを、カソード側に  $70^\circ\text{C}$  の露点となるよう加湿・加温した空気を供給した。その結果、電流を外部に出力しない無負荷時には、 $96 \text{ V}$  の電池開放電圧を得た。

この燃料電池を、燃料利用率 75%、酸素利用率 50%、電流密度  $0.3 \text{ A/cm}^2$  の条件で連続発電し、出力特性の時間変化を測定した。本実施例の燃料電池の運転を 2000 時間行った結果、初期の出力  $3.07 \text{ kW}$  ( $71 \text{ V}-43.2 \text{ A}$ ) に対して、2000 時間後には出力が  $2.85 \text{ kW}$  ( $66 \text{ V}-43.2 \text{ A}$ ) に低下していることを確認した。

#### 【0073】

##### 《比較例 2》

セパレータの溝構造を変更したこと以外、実施例 1 と同様の燃料電池を作製した。ここで用いたセパレータは、溝部 21a、21b、21c の溝幅を  $1.2 \text{ mm}$ 、溝深さを  $1.2 \text{ mm}$  で、溝一本当たりの等価直径を  $1.35 \text{ mm}$  とし、ガス流通溝の最上流側の水平部と最下流側の水平部との間の直線距離  $b$  に対する水平

部の長さ  $a$  の比:  $a/b$  は 1.3 とし、互いに隣接する水平部間のリブ 22a、22b、22c の幅  $c$  は 1.5 mm、リブ幅  $c$  の長さ  $a$  に対する比:  $c/a$  は 1/19 としたこと以外、実施例 1 と同様の溝構造とした。

#### 【0074】

このように作製した本実施例の高分子電解質型燃料電池を、70℃に保持し、カソード側に 70℃の露点となるよう加湿・加温した水素ガスを、カソード側に 70℃の露点となるよう加湿・加温した空気を供給した。その結果、電流を外部に出力しない無負荷時には、9.6 V の電池開放電圧を得た。

この燃料電池を、燃料利用率 75%、酸素利用率 50%、電流密度 0.3 A/cm<sup>2</sup> の条件で連続発電し、出力特性の時間変化を測定した。本実施例の燃料電池の運転を 2000 時間行った結果、初期の出力 3.02 kW (70 V - 43.2 A) に対して、2000 時間後には出力が 2.76 kW (64 V - 43.2 A) に低下していることを確認した。

#### 【0075】

##### 《実施例 8》

セパレータを変更したこと以外、実施例 1 と同様の燃料電池を作製した。ここで用いたセパレータは、実施例 1 と同じく、緻密でガス透過性のないカーボン板の表面に切削加工によりガス流通溝を形成することにより、導電性セパレータを作製した。ここでは、カーボン板の一方の面に図 5、他方の面に図 6 に示すような溝を形成したセパレータ (O) と、カーボン板の一方の面に図 5、他方の面に図 4 に示すような溝を形成したセパレータ (P) と、カーボン板の一方の面に図 6、他方の面に図 4 (ただしマニホールド穴の配置は異なる) に示すような溝を形成したセパレータ (Q) の 3 種類を作製した。図 5 および図 6 に示す溝は、それぞれ酸化剤ガス流通溝および燃料ガス流通溝とした。図 4 に示す溝は、実施例 1 と同様に冷却水流通溝とした。

#### 【0076】

セパレータの大きさは、実施例 1 と同様で、いずれも 20 cm × 20 cm、厚さは 3 mm とした。各セパレータの溝部 31a、31b の溝幅は 0.7 mm、深さは 0.7 mm で、断面は凹形状とし、溝一本当たりの等価直径は 0.79 mm

とした。各ガス流通溝の形状は、上流から下流に向かって蛇行しながら伸びるサーペンタイン状であり、各ガス流通溝は、互いに平行で実質的に同じ長さ  $a$  を有する複数の水平部を有し、最上流側の水平部と最下流側の水平部との間の直線距離  $b$  に対する長さ  $a$  の比： $a/b$  は 0.2 とした。また、互いに隣接する水平部間のリブ 32a、32b の幅  $c$  は 0.7 mm であり、リブ幅  $c$  の長さ  $a$  に対する比： $c/a$  は 1/30 とした。なお、サーペンタイン状流路の最上流部および最下流部とマニホールド穴との間には、マトリックス状流路 37 を介在させた。

#### 【0077】

次いで、各セパレータに所定のマニホールド穴、すなわち酸化剤ガス注入口 33a、酸化剤ガス出口 33b、燃料ガス注入口 34a、燃料ガス出口 34b、冷却水注入口 35a、および冷却水出口 35b を形成した。なお、全てのセパレータの同じ位置に同じ大きさのマニホールド穴を形成した。また、各セパレータの四隅には締結ロッド孔 36 を形成した。

#### 【0078】

このように作製した本実施例の高分子電解質型燃料電池を、70℃に保持し、カソード側に70℃の露点となるよう加湿・加温した水素ガスを、カソード側に70℃の露点となるよう加湿・加温した空気を供給した。その結果、電流を外部に出力しない無負荷時には、98.5 V の電池開放電圧を得た。

この燃料電池を、燃料利用率 75%、酸素利用率 50%、電流密度 0.3 A/cm<sup>2</sup> の条件で連続発電し、出力特性の時間変化を測定した。その結果、本実施例の燃料電池は、8000 時間以上にわたって 3.1 kW 以上 (72 V - 43.2 A) の出力を維持することを確認した。

#### 【0079】

##### 《実施例 9》

セパレータの溝構造を変更したこと以外、実施例 8 と同様の燃料電池を作製した。ここで用いたセパレータは、溝部 31a、31b の溝幅を 1.0 mm、溝深さを 1.0 mm で、溝一本当たりの等価直径を 1.13 mm とし、ガス流通溝の互いに隣接する水平部間のリブ 32a、32b の幅  $c$  は 1.0 mm、リブ幅  $c$  の長さ  $a$  に対する比： $c/a$  は 1/20 としたこと以外、実施例 8 と同様の溝構造

とした。

ガス流通溝の最上流側の水平部と最下流側の水平部との間の直線距離  $b$  に対する水平部の長さ  $a$  の比:  $a/b$  は、実施例 8 と同じとした。

#### 【0080】

このように作製した本実施例の高分子電解質型燃料電池を、 $70^{\circ}\text{C}$  に保持し、カソード側に  $70^{\circ}\text{C}$  の露点となるよう加湿・加温した水素ガスを、カソード側に  $70^{\circ}\text{C}$  の露点となるよう加湿・加温した空気を供給した。その結果、電流を外部に出力しない無負荷時には、 $98\text{ V}$  の電池開放電圧を得た。

この燃料電池を、燃料利用率  $75\%$ 、酸素利用率  $50\%$ 、電流密度  $0.3\text{ A/cm}^2$  の条件で連続発電し、出力特性の時間変化を測定した。その結果、本実施例の燃料電池は、 $8000$  時間以上にわたって  $3.1\text{ kW}$  以上 ( $72.2\text{ V}-43.2\text{ A}$ ) の出力を維持することを確認した。

#### 【0081】

##### 《実施例 10》

セパレータの溝構造を変更したこと以外、実施例 8 と同様の燃料電池を作製した。ここで用いたセパレータは、溝部 31a、31b の溝幅を  $1.2\text{ mm}$ 、溝深さを  $1.1\text{ mm}$  で、溝一本当たりの等価直径を  $1.30\text{ mm}$  とし、ガス流通溝の互いに隣接する水平部間のリブ 32a、32b の幅  $c$  は  $1.0\text{ mm}$ 、リブ幅  $c$  の長さ  $a$  に対する比:  $c/a$  は  $1/20$  としたこと以外、実施例 8 と同様の溝構造とした。

ガス流通溝の最上流側の水平部と最下流側の水平部との間の直線距離  $b$  に対する水平部の長さ  $a$  の比:  $a/b$  は、実施例 8 と同じとした。

#### 【0082】

このように作製した本実施例の高分子電解質型燃料電池を、 $70^{\circ}\text{C}$  に保持し、カソード側に  $70^{\circ}\text{C}$  の露点となるよう加湿・加温した水素ガスを、カソード側に  $70^{\circ}\text{C}$  の露点となるよう加湿・加温した空気を供給した。その結果、電流を外部に出力しない無負荷時には、 $98.5\text{ V}$  の電池開放電圧を得た。

この燃料電池を、燃料利用率  $75\%$ 、酸素利用率  $50\%$ 、電流密度  $0.3\text{ A/cm}^2$  の条件で連続発電し、出力特性の時間変化を測定した。その結果、本実施

例の燃料電池は、8 0 0 0 時間以上にわたって 3 . 1 k W 以上（7 2 . 6 V - 4 3 . 2 A）の出力を維持することを確認した。

### 【0 0 8 3】

#### 【発明の効果】

本発明によれば、フラッディング現象を防止しつつ、高性能で耐久性の高い燃料電池を実現できる。

#### 【図面の簡単な説明】

##### 【図 1】

本発明の実施例に係る M E A の構成を示す断面図である。

##### 【図 2】

本発明の実施例 1 の燃料電池に用いたセパレータの酸化剤ガス流通溝の構造を示す正面図である。

##### 【図 3】

本発明の実施例 1 の燃料電池に用いた図 2 のセパレータの燃料ガス流通溝の構造を示す背面図である。

##### 【図 4】

本発明の実施例 1 の燃料電池に用いた図 2 の別のセパレータの冷却水流通溝の構造を示す背面図である。

##### 【図 5】

本発明の実施例 8 の燃料電池に用いたセパレータの酸化剤ガス流通溝の構造を示す平面図である。

##### 【図 6】

本発明の実施例 8 の燃料電池に用いた図 5 のセパレータの燃料ガス流通溝の構造を示す背面図である。

#### 【符号の説明】

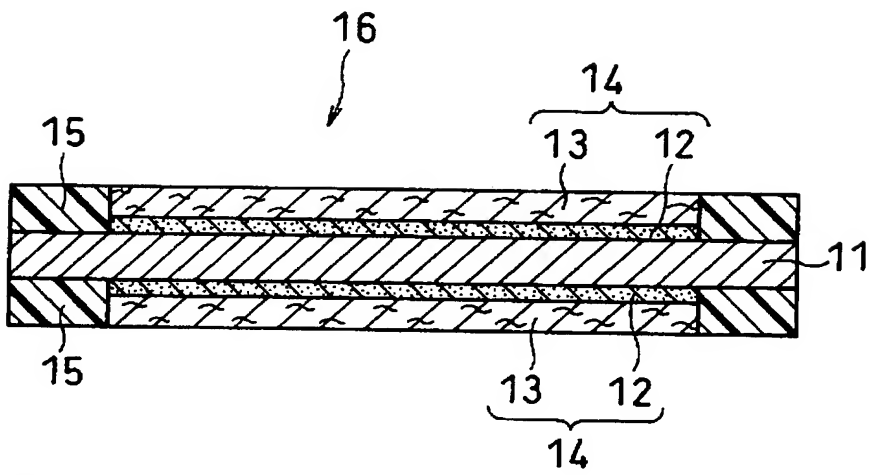
- 1 1 高分子電解質膜
- 1 2 触媒反応層
- 1 3 ガス拡散層
- 1 4 電極



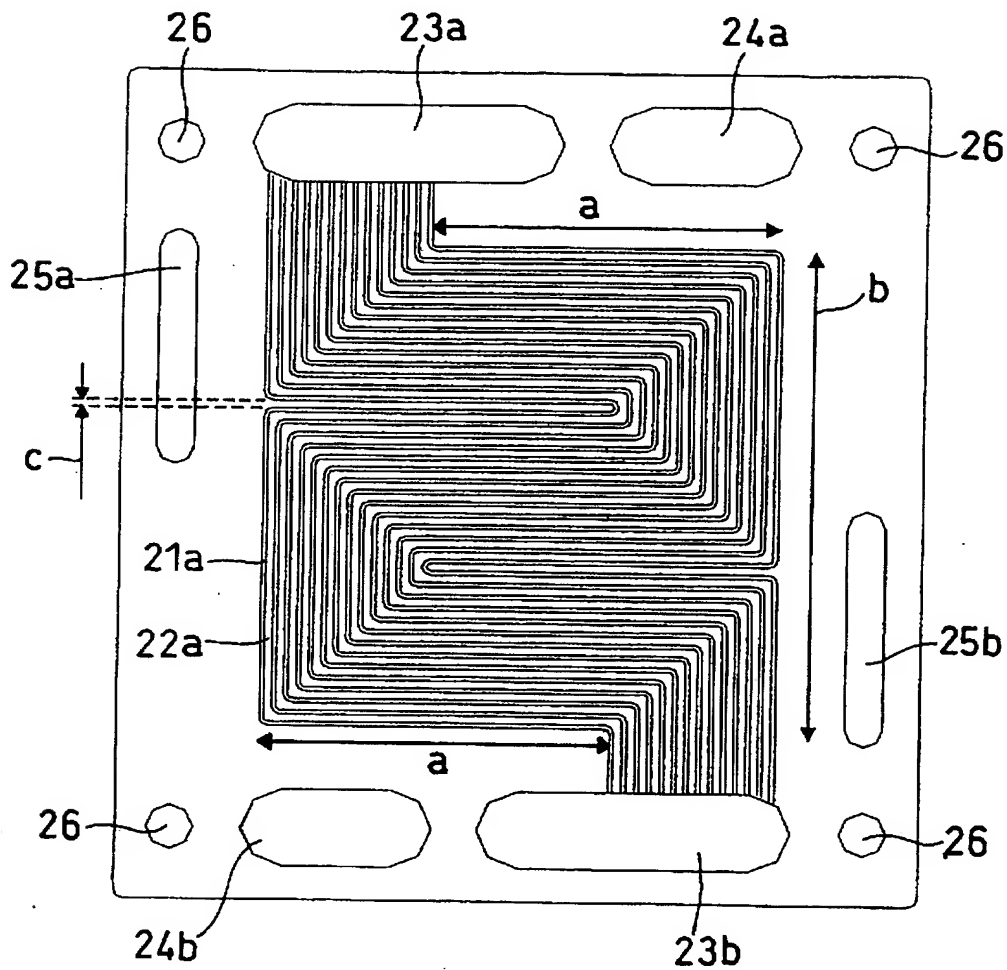
- 1 5 ガスシール材
- 1 6 E M A
- 2 1 a 酸化剤ガス流通溝
- 2 1 b 燃料ガス流通溝
- 2 1 c 冷却水流通溝
- 2 2 a 酸化剤ガス流通溝間のリブ
- 2 2 b 燃料ガス流通溝間のリブ
- 2 2 c 冷却水流通溝間のリブ
- 2 3 a 酸化剤ガス注入口
- 2 3 b 酸化剤ガス出口
- 2 4 a 燃料ガス注入口
- 2 4 b 燃料ガス出口
- 2 5 a 冷却水注入口
- 2 5 b 冷却水出口
- 2 6 締結ロッド孔
- 3 1 a 酸化剤ガス流通溝
- 3 1 b 燃料ガス流通溝
- 3 2 a 酸化剤ガス流通溝間のリブ
- 3 2 b 燃料ガス流通溝間のリブ
- 3 3 a 酸化剤ガス注入口
- 3 3 b 酸化剤ガス出口
- 3 4 a 燃料ガス注入口
- 3 4 b 燃料ガス出口
- 3 5 a 冷却水注入口
- 3 5 b 冷却水出口
- 3 6 締結ロッド孔
- 3 7 マトリックス状流路

【書類名】 図面

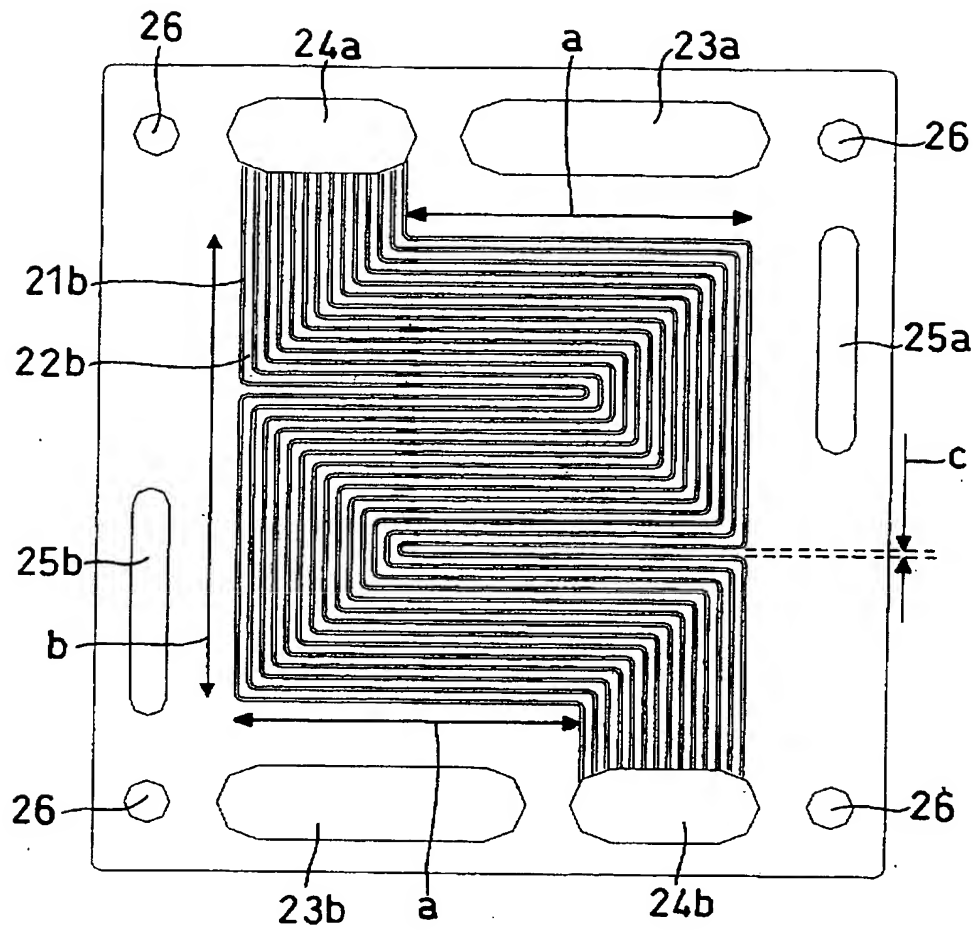
【図 1】



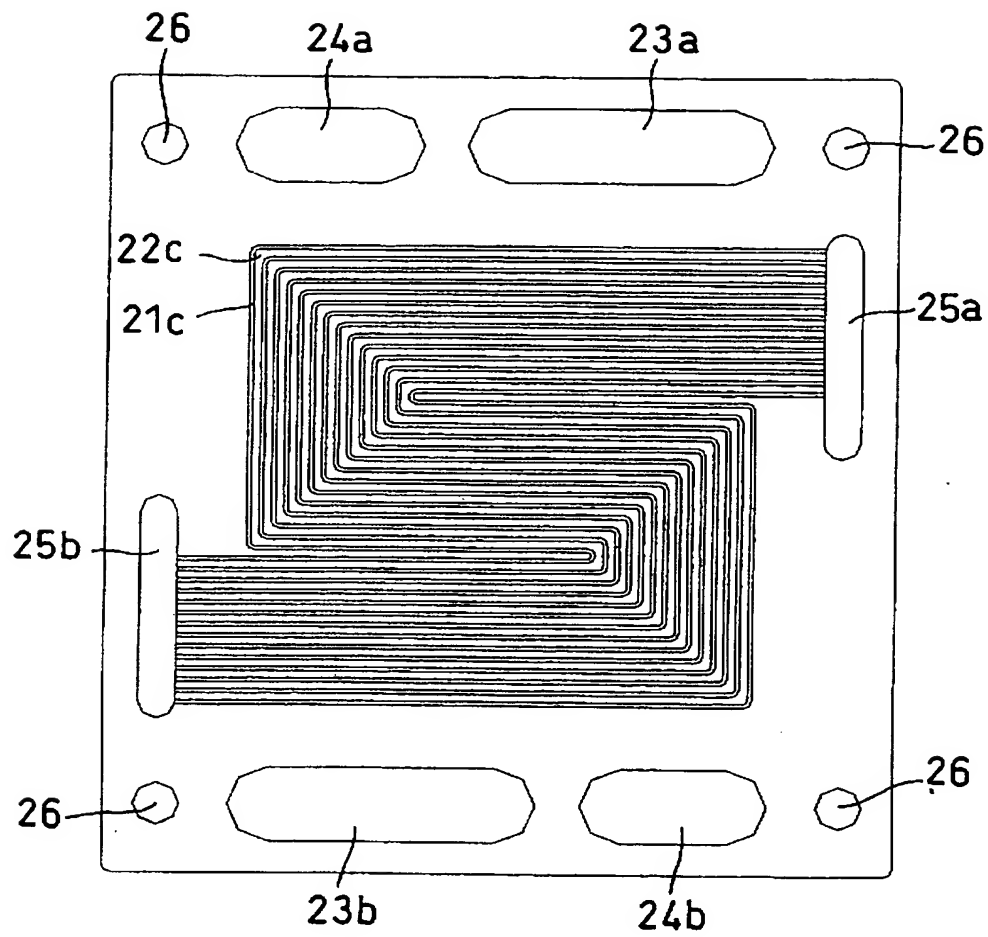
【図 2】



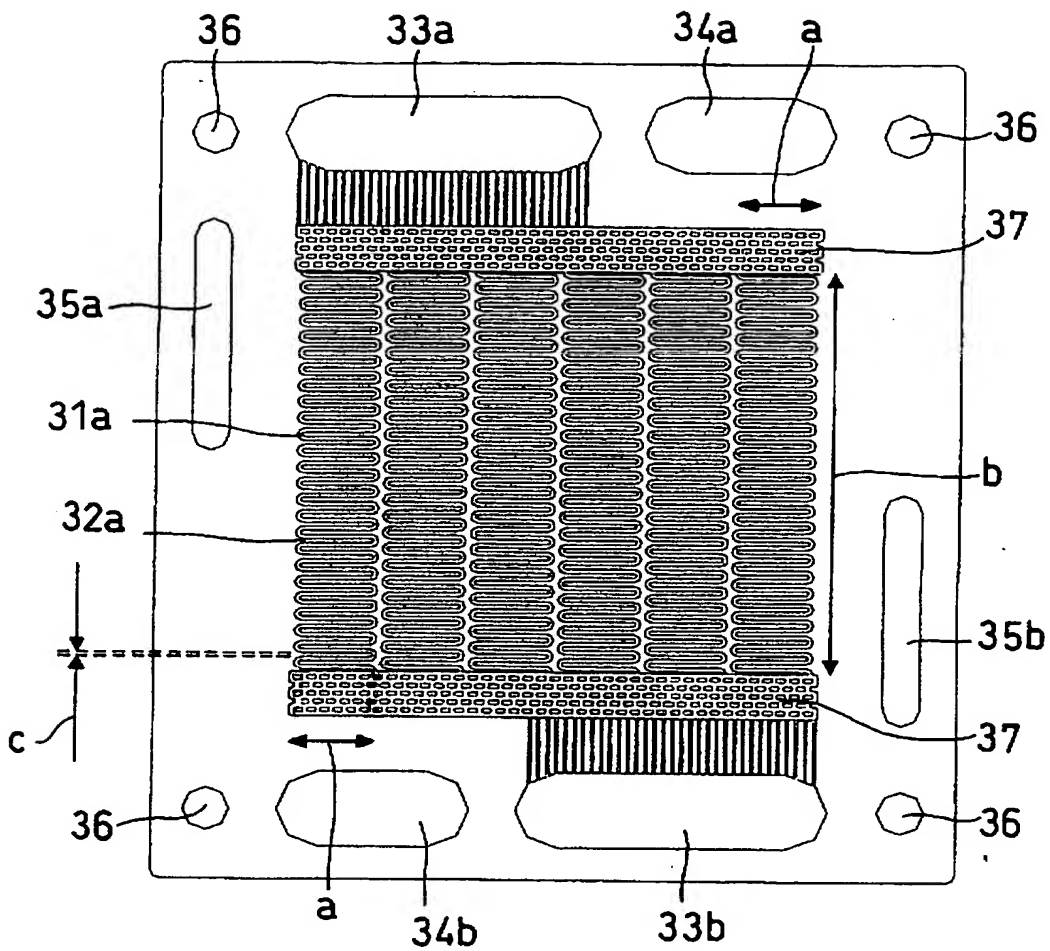
【図 3】



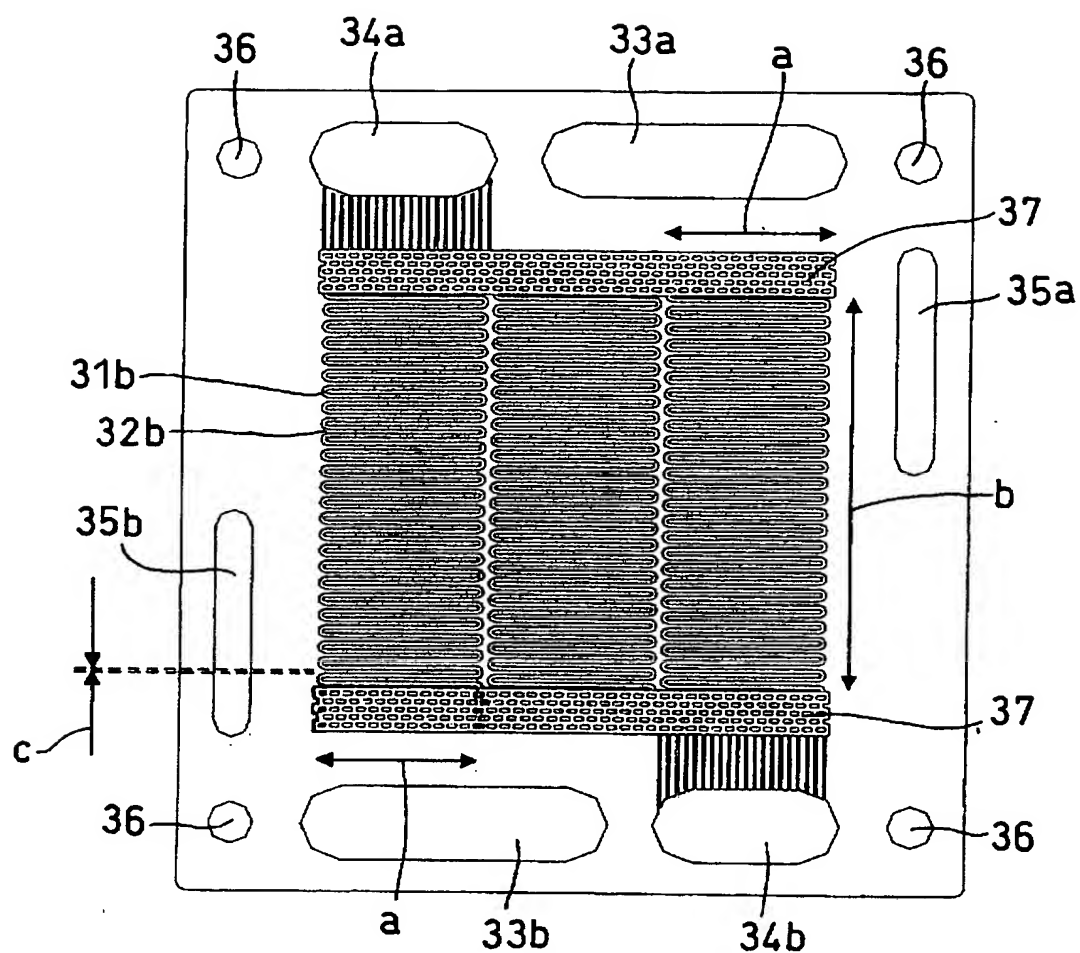
【図 4】



【図 5】



【図 6】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 フラッディング現象を防止しつつ、高性能で耐久性の高い燃料電池を実現する。

【解決手段】 イオン伝導性電解質、前記イオン伝導性電解質を挟持するアノードとカソード、前記アノードに接するアノード側導電性セパレータ、および前記カソードに接するカソード側導電性セパレータからなる単セルを積層してなる燃料電池において、前記アノード側導電性セパレータは、前記アノードと対面する部位に、前記アノードに燃料ガスを供給するための燃料ガス流通溝を有し、前記カソード側導電性セパレータは、前記カソードと対面する部位に、前記カソードに酸化剤ガスを供給するための酸化剤ガス流通溝を有し、前記燃料ガス流通溝および前記酸化剤ガス流通溝の少なくとも一方は、上流から下流に向かって蛇行しながら伸びるサーペントイン状であって、互いに平行で実質的に同じ長さ  $a$  を有する複数の水平部を有し、前記複数の水平部のうち、最上流側の水平部と最下流側の水平部との間の直線距離  $b$  に対する前記長さ  $a$  の比が、 $a/b \leq 1.2$  を満たすことを特徴とする燃料電池。

【選択図】 図 2

認定・付加情報

特許出願の番号	特願 2 0 0 2 - 3 0 1 9 2 0
受付番号	5 0 2 0 1 5 5 7 0 2 1
書類名	特許願
担当官	第五担当上席 0 0 9 4
作成日	平成 1 4 年 1 0 月 1 7 日

< 認定情報・付加情報 >

【提出日】	平成14年10月16日
-------	-------------

次頁無





特願 2 0 0 2 - 3 0 1 9 2 0

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[ 0 0 0 0 0 5 8 2 1 ]

1. 変更年月日

1 9 9 0 年 8 月 2 8 日

[変更理由]

新規登録

住 所

大阪府門真市大字門真 1 0 0 6 番地

氏 名

松下電器産業株式会社